

ウラン濃縮プラントにおける同位体計測法に関する基礎的研究

著者	長戸路 雄厚
号	718
発行年	1983
URL	http://hdl.handle.net/10097/11667

氏 名	なが と ろ ゆう こう 長 戸 路 雄 厚
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和 59 年 3 月 14 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最 終 学 歴	昭和 44 年 3 月 東北大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士課程修了
学 位 論 文 題 目	ウラン濃縮プラントにおける同位体計測法に関する 基礎的研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 梶山 一典 東北大学教授 井上 泰 東北大学教授 瀬戸 邦夫 東北大学教授 鈴木 進

論 文 内 容 要 旨

ウラン濃縮プラントの建設が現実的になるにつれ、プラント制御が大きな問題として前面に出現してきた。ウラン濃縮関係では、プラント内を流動するUF₆の²³⁵U同位体比(²³⁵U/²³⁸U)の値を追跡かつ監視する技術を確立することが懸案となっている。これは、プラント制御に必要な基本情報である²³⁵U同位体比の値を早期に取得して効率の良いプラント制御を実現するために重要である。それには、オン・ストリームで²³⁵U同位体比を計測できるシステムの研究と開発が必須と言える。

本研究の目的は、高精度の²³⁵U同位体比の値を実時間で長期間継続してプラント運転制御関係者に提供できる信頼性の高い新しい計測システムを研究・開発してその設計思想を確立し、さらにその基本特性を調べると共に、遠心分離機 250 台で構成するカスケードに用いてウラン濃縮プラントへの適用性を立証することにある。

本論文は六章より成り、以下に各章毎に内容を要約する。

第 1 章 序 論

本研究の目的と意義ならびに研究の展開の仕方を明確にした。

現段階では、ウラン濃縮プラントの定常および非定常運転条件下における²³⁵U同位体の分離特性を、オン・ストリームで計測する目的に十分適用できるシステムの報告は無い。

腐食性の強い計測困難な物質を研究対象としながらも、精度の高い良質の情報を生産できる計測

システムを研究・開発するには、広く計測工学という考え方に立脚しなければならない。

第2章 ウラン濃縮プラントにおける同位体計測システムの現状と問題点

UF₆の質量分析では、磁場型質量分析計と四重極子型質量分析計による研究が実績を有している。本章では、両方式につき著者が実際に行なって得た結果に基づいて、同位体計測技術の現状と問題点を明らかにした。オン・ストリーム目的の計測システムとしては、²³⁵U同位体比の測定精度が高いことの他に、イオン源寿命が長いこと、そしてメモリー効果の影響が小さいことが極めて重要な条件である。

同位体計測システム内で常時腐食性の強いUF₆との接触強いられるシステム構成要素は、イオン源とイオン源近傍に設置する試料導入管である。したがって、イオン源と試料導入管の性能がシステムの信頼性を支配する。

現状のシステムは、所定の同位体比測定精度を維持できる時間、即ち寿命が短かくまたメモリー効果による同位体比測定値の誤差が大きいため、本研究の目的に合致しない。

UF₆の同位体計測システムでは、UF₆とイオン源との接触を抑制し、イオン源電極の表面を清浄な状態に保持することが安定した計測を遂行する上での基本思想であった。しかし、真空環境内に気体試料を導入すると噴流化現象により試料は瞬時に膨張して拡がる。

その結果、UF₆とイオン源は接触して電極表面に汚れ(UF₄, UO₂F₂, 有機物のフッ化物等)が蓄積し、イオン源内電位分布を乱す。

電極表面の汚れは短寿命と大きなメモリー効果をもたらす。各研究者は、UF₆とイオン源との接触を低減するべく努力を重ね、試料導入法そしてイオン源と試料導入管の構造に工夫を加えてきた。そこで、排気コンダクタンスの大きいイオン源の設計、拡がりの小さいUF₆の流れを選択する機構の開発等を行なった。しかし、これらの対策は徹底さを欠いたため十分な効果を上げることは出来なかった。

本研究では、分析場に電場を用い高速質量掃引が可能で高分解能化が容易、かつ小型で操作が簡単な四重極子型質量分析計を主体とする計測システムを選択すべきであることを提案した。

第3章 ウラン濃縮プラントにおけるオン・ストリーム同位体計測システムの思想と設計

オン・ストリーム同位体計測システムの具備すべき特性、設計思想および設計の最適化につき述べた。具備すべき特性は、²³⁵U同位体比の測定精度が±0.5%以内であること、メモリー効果による測定誤差が0.1%以内であること、一試料の測定時間が5分以内であること、そしてイオン源寿命が1,000時間以上であることの諸項目である。これらの特性を満足する計測システムを設計する際最も重要なことは、UF₆分子とイオン源、即ちイオン化室との接触の徹底的低減化である。本研究では、以下の思想による設計の最適化を強調した。

- (1) イオン源は、微小流量条件下においても感度が高く、UF₆分子のイオン化室内滞在時間の短縮が可能で、そしてイオン化室内の表面積を低減した構造とする。

(2) 試料流を試料導入管内で大きく膨張させることにより、試料流がイオン化室内で噴流化する現象を最小化する。

(3) 試料導入管は、微小流量条件下で高速の進行方向性の良い試料流を形成できる構造とする。

これらの思想に適合するイオン源を図1に示す。イオン源排気コンダクタンスは、イオン化室壁の撤去により真空ポンプの UF_6

排気コンダクタンスに一致し、

20 l/secと大きくなった。また、

UF_6 分子のイオン化室滞在時間

も約100 μ sec と短時間となった。

試料導入管は、末広がり構造のものを設計し、寸法と共に図2に示した。試料流速を導入管の最小断面

面ですべての試料雰囲気中の音速に到達させると、以後試料流は管内

で急速に膨張しつつ超音速で、進行方向が収束した拡がりの小さい

流れとなってイオン化室内に入射する。本設計では、 UF_6 流量

0.45 mg/h の微小流量の下で、 UF_6 を音速の3倍以上の高速度

とし、さらに出射後の流れの拡がりを管軸方向を基準にして3°以内とした。

つぎに、従来の研究では定性的にしか考察されていなかった UF_6 分子とイオン化室との接触現象を、

気体分子運動論を用いて衝突回数という概念を導入することにより

定量化した。衝突回数は、ある時刻にイオン化室内に入射した1個の分子が入射後排気されるまでの間にイオン化室内単位面積と衝突する回数と定義する。そして、温度T、分子量Mの気体分子の衝突回数(N_c)を、式(1)のようにイオン化室の3辺の寸法(L_x, L_y, L_z)、容積(V)、排気コンダクタンス(C)、内表面積(S)ならびに試料流量等で表現する数学モデルを導いた。

$$N_c = \left(\frac{8RT}{3\pi M} \right)^{1/2} \cdot \left(\frac{1}{L_x} + \frac{1}{L_y} + \frac{1}{L_z} \right) \cdot \left(\frac{V}{S \cdot C} \right) \cdot F \cdot K \quad (1)$$

ここで、Fは実際の試料流量と基準流量である1 mg/hとの比、Kはイオン化室内の実際の表面

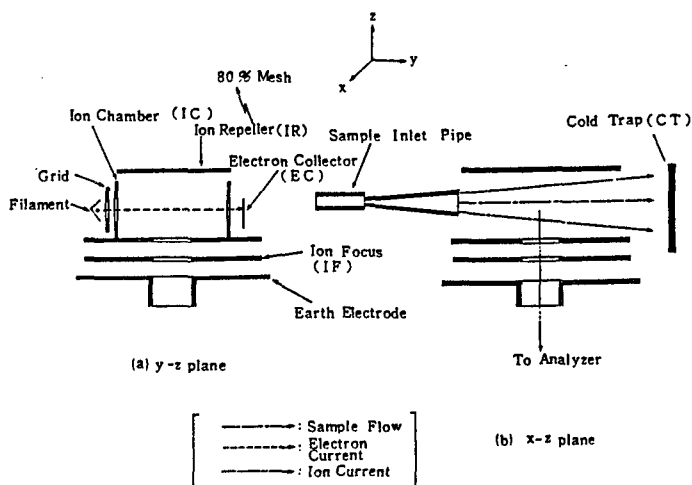


図1 本研究によるイオン源の構造

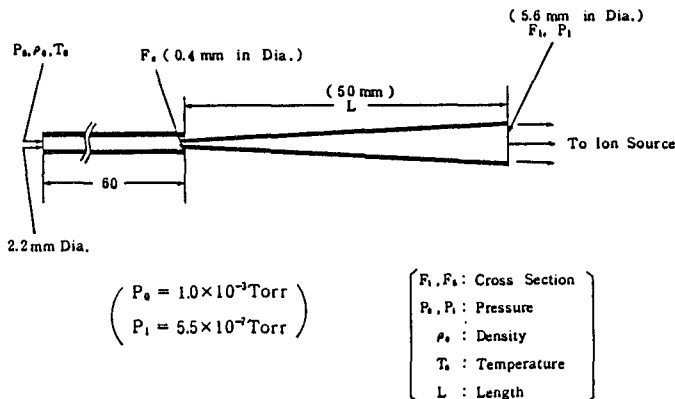


図2 本研究による試料導入管の構造

刻にイオン化室内に入射した1個の分子が入射後排気されるまでの間にイオン化室内単位面積と衝突する回数と定義する。そして、温度T、分子量Mの気体分子の衝突回数(N_c)を、式(1)のようにイオン化室の3辺の寸法(L_x, L_y, L_z)、容積(V)、排気コンダクタンス(C)、内表面積(S)ならびに試料流量等で表現する数学モデルを導いた。

積とイオン化室寸法から算出する面積の比，そしてRはガス定数である。イオン源寿命やメモリー効果の大きさは， UF_6 分子とイオン化室との衝突回数で支配されると考えると，衝突回数の大きさはシステム性能を表示する指標となる。

第4章 新型同位体計測システムの開発と基本特性

新型の同位体計測システムをオフ・ストリーム条件下で駆使して，その基本特性の把握ならびに設計思想の評価を行なった。

本システムは， $0.3 \sim 0.4 \text{ mg/h}$ の微小流量条件下で安定稼動し，感度は $(1 \sim 2) \times 10^{-4} \text{ A/Torr}$ の高感度を，そして ^{235}U 同位体比の測定精度は，精密さと正確さ共に $\pm 0.45 \%$ 以内の高精度を達成した。

一試料の測定所要時間は4分以内と短時間となった。また，メモリー効果の影響は，引き続き計測する試料間の同位体比の差が36%以内の広範囲内で全く無視できることが明らかとなった。さらに，イオン源寿命は2,000時間以上の長寿命のものであることを確認した。

本システムは，第3章で述べたオン・ストリーム同位体計測システムの具備すべき特性を全て満足する高性能のものであることが明確となった。また，衝突回数の異なるイオン源を製作し，衝突回数と寿命およびメモリー効果の関係を両対数表示すると，図3に示したような関数関係が成立した。イオン源寿命は，実験前の予測と良く一致した。別構造のイオン源を製作する場合，衝突回数の小さい構造のものを設計すれば良い。

以上より，本研究の設計思想に基づいた結果は，過去の研究を凌駕するものとなった。

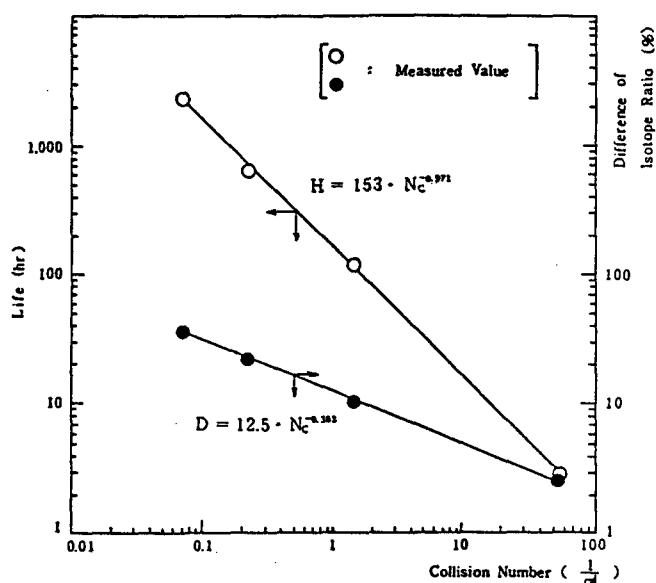


図3 イオン源寿命ならびにメモリー効果の影響と衝突回数の関係

第5章 新型同位体計測システムのオン・ストリーム条件下における特性とウラン濃縮プラントへの適用性

本システムを，実験目的で建設したカスケードに接続して， ^{235}U 同位体比を速くかつ正確に計測できることを実証した。

カスケードプロダクトの同位体比を連続測定した結果を図4に示す。本システムは、 ^{235}U 同位体比をメモリ効果の影響を受けずに $\pm 0.45\%$ 以内の高精度で決定でき、カスケードの運転条件の変更に伴う同位体比の急速な変動や、図4のように定常運転条件下における同位体比の微弱な変動も実時間で追跡できた。また、本システムは、カスケードで発生する異常のうち最も警戒を必要とする真空漏洩を UF_6 中の空気量で0.1体積%以下の微弱なうちに検出でき、異常診断能力も持つことが証明できた。

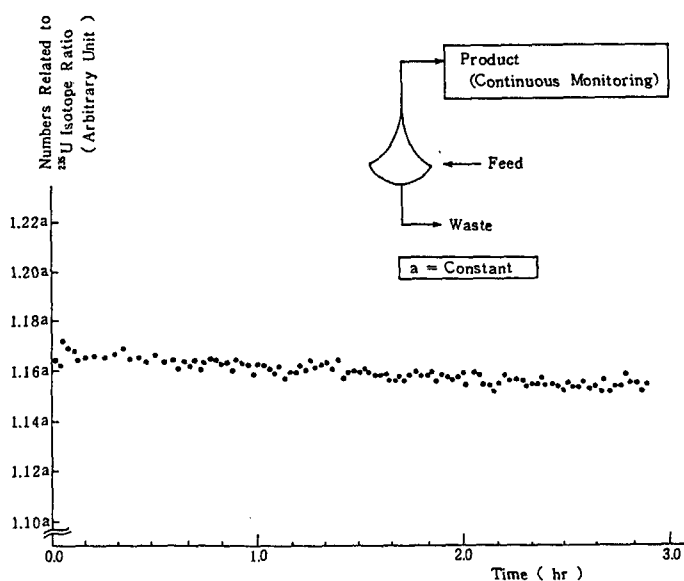


図4 オン・ストリーム実験
(カスケードプロダクトの同位体比連続測定)

このシステムをウラン濃縮プラントに適用すると、以下の条項が実施できると考えられる。

- (1) プラントの同位体分離特性、段の同位体分離特性、および動特性の実時間計測。
- (2) プラント内を流動する UF_6 の ^{235}U 同位体比の $\pm 0.45\%$ 以内の高精度計測。
- (3) 分離係数1.13の遠心分離機でプラントを構成する場合、分離パワー $\pm 10\%$ 以内、カット $\pm 5.9\%$ 以内の高精度での評価。
- (4) 分離係数1.17の遠心分離機でプラントを構成する場合、分離パワー $\pm 8.1\%$ 以内、カット $\pm 4.6\%$ 以内の高精度での評価。

プラント制御上重要なこれらの数値は、いずれも制御上必要な精度を満足している。

以上のように、本研究による同位体計測システムは、その設計思想が実証され、さらにウラン濃縮プラントの運転制御に貢献できる高信頼性のものであることを明らかにした。

第6章 結 論

本論文のまとめとして本研究の成果を述べた。

審 査 結 果 の 要 旨

ウラン濃縮プラントの開発にあたっては、流動する六フッ化ウランの 235 対 238 同位体比を稼動中すなわちオンストリーム中に計測し、稼動状態を把握して制御を行うとともに異常状態を早期に検知することが必要となる。しかし、六フッ化ウランは、同位体比測定用質量分析計イオン源の器壁に付着してメモリ効果をもたらし、また腐食させてイオン源の寿命を短くするなど問題があった。

著者はイオン源の試作を重ねるとともに試料流の理論的解析を行い、ウラン同位体比を実時間で長時間継続して高い精度と信頼性をもつ計測システム実現の研究を行ってきた。本論文はその成果をまとめたもので全編 6 章よりなる。

第 1 章は序論である。

第 2 章では、ウラン濃縮プラントにおける同位体計測システムとして磁場形および四重極形の二種の質量分析計について、従来のイオン源設計方法にしたがって製作し稼動性能試験を行った結果について述べている。従来形のものではメモリ効果が大きく測定精度に限界があり、それが試料導入法とイオン化室の壁に原因していることを確めている。

第 3 章において、イオン化室に流入する試料流の形状を流体力学の計算により最適化するとともに、気体分子運動論を援用して衝突回数という概念を導入し試料がイオン化室の壁と接触する現象を定量化している。

第 4 章では、前章における結果にもとづいて設計製作した四重極形質量分析計の性能について述べている。六フッ化ウラン 0.3 mg/h 程度の微小流量で安定に稼動し、 1×10^{-4} A/Torr の感度と、 ± 0.45 % 以下の同位体比測定精度をえている。また、一試料の測定所要時間は 4 分以下で、引続き計測する試料間の同位体比の差が 36 % 以内ではメモリ効果が無視でき、2,000 時間を越えても性能の変わらないことを示している。

第 5 章で、実際に遠心分離カスケードと接続し、定常運転時における同位体比の微弱な変動の実時間追跡、運転条件の変更にともなう同位体比の急激な変動、さらに空気漏洩異常の早期検知能力を実証している。

第 6 章は結論である。

以上要するに、本論文はウラン濃縮プラントにおける同位体比の実時間計測システムの問題点を解明し、信頼性の高いシステムの設計指針を与えたもので原子核工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。